



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG
Institut für Chemische Technologie

**Zerstörungsfreie Abbrandbestimmung
an kugelförmigen Brennelementen unter
Anwendung der Gammastrahlenspektrometrie**

von

Werner Litzow

Jül - 809 - CT
November 1971

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 809

Institut für Chemische Technologie Jül – 809 – CT

Dok.: Reactor Fuel Reprocessing - Burnup Determination
 Burnup - Gamma Spectrometry
 Burnup - Non-Destructive Testing

Im Tausch zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
 Jülich, Bundesrepublik Deutschland

**Zerstörungsfreie Abbrandbestimmung
an kugelförmigen Brennelementen unter
Anwendung der Gammaskpektrometrie**

von

Werner Litzow

Zusammenfassung

Jede Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen verlangt die Aufstellung einer zuverlässigen Massenbilanz für das spaltbare Material, wofür die genaue Kenntnis des Abbrandes der einzelnen Brennelemente erforderlich ist. Im folgenden wird die zerstörungsfreie Bestimmung des Abbrandes an kugelförmigen Brennstoffelementen unter Anwendung der Gammaskpektrometrie untersucht. Mit Hilfe eines energetisch hochauflösenden Ge (Li)-Halbleiterdetektors wird aus dem vorhandenen Spaltproduktspektrum die 662 keV-Gammalinie des Nuklids Cs-137 für diese Zwecke herangezogen. Alle Fehlerquellen, die mit diesem Verfahren verbunden sind, werden analysiert, um eine Genauigkeit für diese Methode angeben zu können. Desweiteren werden die Konzentrationen anderer bekannter oder noch zu identifizierender Nuklide aus dem Gammaskpektrum untersucht, da sie für spezielle Probleme bei den verschiedenen Wiederaufarbeitungsprozessen von Interesse sind. Unter Berücksichtigung aller Fehlerquellen ist mit der beschriebenen gammaskpektrometrischen Meßanordnung unter den derzeitigen Bedingungen eine bessere Genauigkeit als $\pm 5\%$ für die Bestimmung des Abbrandes und der Nuklidkonzentrationen nicht zu erzielen.

Inhaltsverzeichnis

Zerstörungsfreie Abbrandbestimmung an kugelförmigen Brennstoffelementen unter Anwendung der Gammaspektrometrie

Seite

1.0	Berechnung des Abbrandes eines Th-U-Brennstoffelements aus der Intensität einer Gammalinie des Spaltproduktspektrums	1
1.1	Bestimmung des Ansprechvermögens	5
1.2	Fehlerbetrachtung	7
1.3	Aktivität und Masse	13
1.4	Abschätzung des Neutronenflusses, dem ein Th-U-Brennstoffelement im Reaktor ausgesetzt ist, aus dem Abbrand	15
2.0	Bestimmung der Aktivität und Masse einzelner Nuklide aus der Intensität ihrer Gammalinien im Spaltproduktspektrum	17
2.1	Aktivität der Nuklide	17
2.2	Masse der Nuklide	20
2.3	Fehlerbetrachtung	21
3.0	Grenzen und Leistungsfähigkeit der gammaspektrometrischen Methode zur zerstörungsfreien Abbrand- und Nuklidbestimmung	26
3.1	Abbrandbestimmung	26
3.2	Nuklidbestimmung	29
	Tabelle der gamma-aktiven Spaltprodukt-nuklide	31

1.0 Berechnung des Abbrandes eines Th-U-Brennstoffelements aus der Intensität einer Gammalinie des Spaltproduktspektrums

Die Aufstellung einer zuverlässigen Massenbilanz für das spaltbare Material ist eine unabdingbare Notwendigkeit jeder Wiederaufarbeitung. Dazu gehört zunächst die genaue Kenntnis des Abbrandes der Brennelemente.

Für den Abbrand gibt es jedoch verschiedene Definitionen. Da sich die Wiederaufarbeitung speziell auf Th-U-Brutreaktoren bezieht, erscheint die Anwendung der Definition 'fima' am sinnvollsten. Dies gilt besonders, wenn Untersuchungen an einzelnen Brennstoffelementen vorgenommen werden. Die Bilanzierung verlangt den gesamten Spaltstoff, d. h. außer dem eingesetzten (U-235) noch die durch Konversion (Th-232, U-238) gebildeten Spaltstoffe (U-233, Pu-239).

Die Definition des Abbrandes (pro Brennstoffelement) lautet daher:

$$(1) \quad fima = \frac{N_f}{N_o}$$

N_f = Zahl aller gespaltenen Nuklide

N_o = Zahl aller eingesetzten Schwermetallnuklide

Hierin ist:

$$(2) \quad N_o = \sum_j N_{oj} = L \cdot \sum_j \frac{m_{oj}}{M_{oj}}$$

und $(3) \quad N_f = \sum_i N_{fi}$

Der Index i bezeichnet eine bestimmte Sorte der gespaltenen Nuklide (U-233, U-235, Pu-239), der Index j eine bestimmte Sorte der eingesetzten Schwermetallnuklide (Th-232, U-235, U-238)

L = Loschmidtsche Zahl

m_{oj} = Masse (in Gramm)	} des eingesetzten Schwermetall-
M_{oj} = Nuklidmasse	

Der Prozentsatz der Spaltprodukte einer Sorte k (etwa Cs-137), der sich bei der Spaltung des Nuklids i (etwa U-235) bildet, wird durch die Spaltausbeute festgelegt:

$$(4) \quad N_{ki} = N_{fi} \cdot Y_{ki}$$

N_{ki} = Zahl der Spaltprodukte	} der Sorte k bei der
Y_{ki} = Ausbeute des Spaltprodukts	

Aus den Gleichungen (3) und (4) folgt daher:

$$(5) \quad N_f = \sum_i \frac{N_{ki}}{Y_{ki}}$$

Werden die Gleichungen (2) und (5) in die Gleichung (1) eingesetzt, so ergibt sich:

$$(6) \quad f_{\text{ima}} = \frac{\sum_i \frac{N_{ki}}{Y_{ki}}}{L \cdot \sum_j \frac{m_{oj}}{M_{oj}}}$$

Die Gamma-Aktivität aller, während der Brut- und Spaltvorgänge, gebildeten Spaltprodukte der Sorte k unmittelbar nach Abschalten des Reaktors ist:

$$A_k = N_k \cdot \lambda_k = \sum_i N_{ki} \cdot \lambda_k$$

$N_k = \sum_i N_{ki}$ ist die Zahl aller Spaltprodukte der Sorte k, die durch Spaltung sämtlicher spaltbarer Nuklide gebildet wird.

Nach einer bestimmten Abkühlzeit τ wird diese Aktivität, entsprechend der Zerfallsgeschwindigkeit λ_k des Nuklids, abgeklungen sein:

$$(7) \quad A_k(\tau) = N_k \cdot \lambda_k \cdot e^{-\lambda_k \tau}$$

Meßtechnisch kann die Gamma-Aktivität über die registrierte Zählrate, dem energetischen Ansprechvermögen und der Wahrscheinlichkeit für die betreffende Gamma-Emission ermittelt werden, d. h.:

$$(8) \quad A_k(\tau) = \frac{\dot{n}_{k\lambda}}{w_{k\lambda} \cdot p_{k\lambda}}$$

$\dot{n}_{k\lambda}$	= Zählrate	} für eine bestimmte Gammalinie λ (Energie) des Spaltproduktes k
$w_{k\lambda}$	= Ansprechvermögen	
$p_{k\lambda}$	= Emissionswahrscheinlichkeit (Intensität)	

Aus den Gleichungen (7) und (8) ergibt sich:

$$(9) \quad N_k = \frac{\dot{n}_{k\lambda}}{w_{k\lambda} \cdot p_{k\lambda} \cdot \lambda_k} \cdot e^{\lambda_k \tau}$$

Die Gleichungen (6) und (9) können nicht ohne weiteres miteinander verknüpft werden. Hierzu sind einige Bedingungen

erforderlich:

1. Die Lösung des obigen Problems ist nur durch Annahme einer mittleren Spaltausbeute auf einfache Weise möglich. Dieser Mittelwert muß sich jedoch aus annähernd gleichen Spaltausbeuten für die vorhandenen spaltbaren Nuklide zusammensetzen, da über ihr gebildetes Mengenverhältnis in den einzelnen Brennstoffelementen keine genaue Angabe gemacht werden kann.
2. Von den verschiedenen Definitionen der Spaltausbeuten ist für alle Spaltprodukte nur die Massenausbeute (totale Kettenausbeute) mit recht guter Genauigkeit bekannt. Aus diesem Grunde werden solche Spaltprodukte zur Berechnung herangezogen, deren restliche Glieder (Beta-Strahler) in der betreffenden Massenkette äußerst kurzlebig sind. Erst dann ist die Massenausbeute ein Maß für die Bildung des betreffenden Spaltprodukts.

Existieren bestimmte Massenbereiche, für welche die Massenausbeuten annähernd gleiche Werte besitzen, kann ein Mittelwert für die Massenausbeute angesetzt werden:

$$\bar{Y}_k = \frac{\sum_i Y_{ki}}{\sum_i}$$

Gleichung (5) vereinfacht sich demzufolge:

$$N_f = \frac{1}{\bar{Y}_k} \cdot \sum_i N_{ki} = \frac{1}{\bar{Y}_k} \cdot N_k$$

Jetzt dürfen die Gleichungen (6) und (9) in Verbindung gebracht werden:

$$f_{ima} = \frac{N_k}{L \cdot \bar{Y}_k \cdot \sum_j \frac{m_{oj}}{M_{oj}}}$$

$$(10) \quad f_{ima} = \frac{\dot{n}_{k\lambda} \cdot e^{\lambda_k \tau}}{L \cdot \bar{Y}_k \cdot w_{k\lambda} \cdot p_{k\lambda} \cdot \lambda_k \cdot \sum_j \frac{m_{oj}}{M_{oj}}}$$

Hiermit ist das rechnerische Problem gelöst, aber für die genauere Bestimmung des Abbrandes müssen noch weitere Bedingungen erfüllt sein.

1. Die Halbwertszeit des betreffenden Spaltprodukts muß groß gegenüber der Bestrahlungszeit und nachfolgenden längeren Abkühlzeit des Brennstoffelements sein, damit ihre charakteristischen Gammalinien noch mit genügend starker Intensität aus dem Spaltproduktspektrum hervortreten.
2. Die Genauigkeit der Abbrandbestimmung hängt unter anderem von der Intensität der betrachteten Gammalinie ab. Eine intensitätsreiche Linie wird, wegen des kleineren statistischen Fehlers, eine entsprechend höhere Genauigkeit liefern. Deshalb muß eine Gammalinie möglichst starker Intensität ausgewählt werden.

Ein Spaltprodukt, welches alle angeführten Bedingungen am besten erfüllt, ist Cs-137 mit seiner Gammalinie bei 662 keV.

Werden alle bekannten Größen in die Gleichung (10) eingesetzt, so vereinfacht sich der Ausdruck erheblich:

$$\begin{aligned}
 L &= 6,02 \cdot 10^{23} \quad [\text{mol}^{-1}] \\
 \bar{Y}_k &= 0,0618 \quad \text{aus } 0,0621 \text{ (U-235) und } 0,0613 \text{ (U-233)} \\
 P_{k\lambda} &= 0,85 \\
 \lambda_k &= 7,32 \cdot 10^{-10} \quad [\text{sec}^{-1}] = 0,0231 \quad [\text{y}^{-1}]
 \end{aligned}$$

$$\sum_j \frac{m_{0j}}{M_{0j}} = m_0 \cdot \sum_j \frac{c_j}{M_{0j}} = m_0 \cdot \left(\frac{c_1}{M_{01}} + \frac{c_2}{M_{02}} + \frac{c_3}{M_{03}} \right)$$

m_0 = Gesamtmasse aller eingesetzten Schwermetallnuklide

c_j = Anteil des Schwermetallnuklids j an der Gesamtmasse, $\sum_j c_j = 1$.

$$\left. \begin{array}{ll}
 \text{Index 1 : Th-232} & M_{01} = 232 \\
 \text{Index 2 : U-235} & M_{02} = 235 \\
 \text{Index 3 : U-238} & M_{03} = 238
 \end{array} \right\} \quad \text{Nuklidmassen}$$

Bei allen Brennstoffkugeln wird außer der Gesamtmasse der eingesetzten Schwermetallnuklide m_0 noch das Massenverhältnis von Th-232 zu U-235, $v = \frac{c_1}{c_2}$, angegeben. In allen Fällen ist stets $v \geq 5$. Der Anteil an U-238 mit $c_3 \leq 1$ % kann vernachlässigt werden, da sein Beitrag zum Abbrandwert über die Menge des erbrüteten und gespaltenen Pu-239 $< 0,1$ % ist. Des weiteren kann, da sich

die Nuklidmassen der Schwermetallnuklide nur wenig unterscheiden, ein Mittelwert für sie angegeben werden. Auf Grund des hohen Anteils an Th-232 ergibt sich dieser zu $\bar{M}_0 = 232 \text{ [g} \cdot \text{mol}^{-1}]$. Der dadurch bedingte relative Fehler wird $\leq 0,2\%$ und ist vernachlässigbar.

Daraus folgt:

$$\sum_j \frac{m_{0j}}{M_{0j}} = \frac{m_0 c_2}{M_0} (v+1)$$

$$f_{\text{ima}} = 10^{-11} \cdot \frac{\dot{n}_{k\lambda} \cdot e^{0,0231 \cdot T(y)}}{w_{k\lambda} \cdot m_0 \cdot c_2 \cdot (v+1)}$$

Die derzeitige Wiederaufarbeitung verarbeitet Brennstoffkugeln mit folgenden Daten:

$$m_0 = 6 \text{ g}$$

$$c_2 = 16,5 \% \text{ (U-235)}$$

$$v = 5 \text{ (Th-232/U-235)}$$

Dies ergibt schließlich:

$$(11) \quad f_{\text{ima}} = 1,68 \cdot 10^{-12} \cdot \frac{\dot{n}_{k\lambda}}{w_{k\lambda}} \cdot e^{0,0231 \cdot T(y)}$$

1.1 Bestimmung des Ansprechvermögens

Eine in Gleichung (11) noch näher zu untersuchende Größe ist das Ansprechvermögen $w_{k\lambda}$. Dieses wird mit Hilfe eines Standardnuklids (Eichpräparates) genügend hoher Aktivität und Genauigkeit experimentell ermittelt. Auch in diesem Falle bestehen zwei zu den Gleichungen (7) und (8) analoge Beziehungen:

$$(12) \quad B_s(t) = B_s \cdot e^{-\lambda_s t}$$

$$(13) \quad B_s(t) = \frac{\dot{z}_{s\lambda}}{w_{s\lambda} \cdot p_{s\lambda}}$$

Der Index s bezeichnet das Standardnuklid.

$B_s(t)$ = Aktivität zur Zeit der Messung

B_s = Aktivität zur Zeit $t = 0$, d. h. zur Zeit seiner eigenen Eichung durch die PTB *

t = Abklingzeit der Aktivität des Standardnuklids

λ_s = Zerfallskonstante

$\dot{z}_{s\lambda}$ = Zählrate

$w_{s\lambda}$ = Ansprechvermögen

$p_{s\lambda}$ = Emissionswahrscheinlichkeit (Intensität)

} für eine bestimmte
Gammalinie λ des
Standardnuklids s

* Physikalisch-Technische-Bundesanstalt, Braunschweig

Aus beiden Gleichungen (12) und (13) kann das Ansprechvermögen ermittelt werden:

$$(14) \quad w_{s\lambda} = \frac{\dot{z}_{s\lambda}}{p_{s\lambda} \cdot B_s} \cdot e^{\lambda_s t}$$

Als Standardnuklid wird zweckmäßigerweise das gleiche Nuklid verwendet, welches auch zur Bestimmung des Abbrandes dient. Unnötige Fehlerquellen, die infolge des verschiedenen energetischen Ansprechvermögens sowie der unterschiedlichen Absorptionen und Streuungen in der Kugelgraphitschicht und an Begrenzungsmaterialien auftreten, werden hierdurch vermieden.

In Gleichung (14) ist deshalb der Index $s = k$ zu setzen, wodurch sich einige bekannte Größen ergeben:

$$\begin{aligned} p_{s\lambda} &= p_{k\lambda} = 0,85 \\ \lambda_s &= \lambda_k = 0,0231 \text{ [y}^{-1}\text{]} \end{aligned}$$

$$(15) \quad \boxed{w_{k\lambda} = 1,18 \cdot \frac{\dot{z}_{k\lambda}}{B_k} \cdot e^{0,0231 \cdot t(y)}}$$

Das Ansprechvermögen kann aus drei bekannten Größen ermittelt werden: der registrierten Zählrate, der Anfangs-Aktivität des Standardnuklids und seiner Abklingzeit.

Zur experimentellen Bestimmung des Ansprechvermögens wurde als Standardnuklid ebenfalls Cs-137 mit seiner Gammalinie bei 662 keV verwendet. Seine Anfangsaktivität wurde von der PTB angegeben mit:

$$B_k = 328 \text{ mCi} = 328 \cdot 3,7 \cdot 10^7 \text{ [sec}^{-1}\text{]} = 1,21 \cdot 10^{10} \text{ [sec}^{-1}\text{]}$$

Die Abklingzeit vom Tag der Eichung durch die PTB bis zum Tag der Messung errechnete sich zu:

$$t = 488 \quad d = 1,34 \quad y$$

Die registrierte Impulsrate des Cs-137 Peaks betrug:

$$\dot{z}_{k\lambda} = 8,75 \quad [\text{sec}^{-1}]$$

Hieraus folgt für das gesamte Ansprechvermögen der Meßanordnung bei der Energie von 662 keV:

$$(16) \quad w_{k\lambda} = 8,75 \cdot 10^{-10}$$

Wird dieser Wert in die Gleichung (11) eingesetzt, erhält man:

$$f_{\text{ima}} = 0,192 \cdot 10^{-2} \cdot \dot{n}_{k\lambda} \cdot e^{0,0231 \cdot \tau(\gamma)}$$

Für Abkühlzeiten τ unter 2,6 Jahren bzw. 950 Tagen ergibt sich, auf Grund des Wertebereiches obiger e-Funktion, für den Abbrand bei vorliegender Geometrie der Meßanordnung und betrachteter Gammaenergie die endgültige Form:

$$(17) \quad f_{\text{ima}} = 0,2 \cdot 10^{-2} \cdot \dot{n}_{k\lambda}$$

1.2 Fehlerbetrachtung

Um Angaben über die Genauigkeit der Abbrandbestimmung machen zu können, müssen einige Fehlerbetrachtungen angestellt werden. Alle Größen, die mit gewissen Ungenauigkeiten behaftet sind, seien zunächst angeführt. Das Symbol η soll stets den maximalen relativen Fehler, das Symbol δ den mittleren relativen Fehler andeuten.

η_y = Fehler in der Angabe des Mittelwertes der Massenausbeute

η_m = Fehler in der Angabe der Gesamtmasse der eingesetzten Schwermetallnuklide pro Brennelement

- σ_n = Statistischer Fehler der Zählrate des Spaltprodukts Cs-137
 σ_z = Statistischer Fehler der Zählrate des Standardnuklids Cs-137
 η_s = Fehler in der Angabe der Anfangsaktivität des Standardnuklids Cs-137
 η_a = Fehler in der Zentrierung des als punktförmig angenommenen Standardpräparates (Cs-137 Perle von 3 mm \varnothing) in der Graphit-Eichkugel
- $\left. \begin{array}{l} \sigma_n \\ \sigma_z \\ \eta_s \end{array} \right\}$ bilden zusammen die Genauigkeit des Ansprechvermögens

Um bei der Genauigkeitsangabe nicht allzu optimistisch vorzugehen, wird man als maximalen relativen Gesamtfehler in der Abbrandbestimmung ansetzen:

$$(18) \quad \Delta = \pm \left(|\eta_y| + |\eta_m| + |\eta_s| + |\eta_a| + |\sigma_n| + |\sigma_z| \right)$$

Schon bekannte und konstante Fehlergrößen können den Ausdruck entsprechend vereinfachen:

$$\begin{aligned}
 \eta_y &= \pm 0,5 \% \\
 \eta_m &= \pm 0,5 \% \\
 \eta_s &= \pm 3,5 \% \\
 \eta_a &= \pm 0,5 \%
 \end{aligned}$$

$$(19) \quad \Delta = \pm \left(0,05 + |\sigma_n| + |\sigma_z| \right)$$

Weiterhin folgt:

$$\sigma_n = \pm \frac{1}{\sqrt{t_n}} \cdot \frac{\sqrt{\dot{p}_n + \dot{u}_n}}{\dot{p}_n - \dot{u}_n} = \pm \frac{1}{\sqrt{t_n}} \cdot \frac{\sqrt{\dot{n}_{k2} + 2\dot{u}_n}}{\dot{n}_{k2}} = \pm \frac{1}{\sqrt{\dot{n}_{k2} \cdot t_n}} \cdot \sqrt{1 + \frac{2\dot{u}_n}{\dot{n}_{k2}}}$$

$$\sigma_z = \pm \frac{1}{\sqrt{t_z}} \cdot \frac{\sqrt{\dot{p}_z + \dot{u}_z}}{\dot{p}_z - \dot{u}_z} = \pm \frac{1}{\sqrt{t_z}} \cdot \frac{\sqrt{\dot{z}_{k2} + 2\dot{u}_z}}{\dot{z}_{k2}} = \pm \frac{1}{\sqrt{\dot{z}_{k2} \cdot t_z}} \cdot \sqrt{1 + \frac{2\dot{u}_z}{\dot{z}_{k2}}}$$

- t_n = Registrierzeit des Spaltproduktspektrums
 t_z = Registrierzeit des Standardspektrums
 \dot{P} = Zählrate des Peaks
 \dot{U} = Zählrate des Untergrundes vom Peak
 $\dot{P} - \dot{U}$ = Zählrate des betreffenden Nuklidanteils (\dot{n} , \dot{z})

Die Zählrate $\dot{z}_{k\lambda}$ besitzt eine obere Grenze, welche von der Aktivität des Standardpräparates und der Meßgeometrie abhängt. Dagegen kann die Registrierzeit t_z des Standardspektrums so weit ausgedehnt werden, daß der relative Fehler δ_z ein bestimmtes Mindestmaß nicht überschreitet. Aus den Eichmessungen folgte für das Verhältnis:

$$\frac{\dot{U}_z}{\dot{z}_{k\lambda}} \approx 0,1$$

Daraus ergibt sich für den Untergrund-Korrekturfaktor:

$$\sqrt{1 + \frac{2\dot{U}_z}{\dot{z}_{k\lambda}}} \approx 1,1$$

Soll der relative Fehler mindestens $\delta_z = \pm 0,3 \%$ betragen, so muß bei der ermittelten Zählrate von $\dot{z}_{k\lambda} = 8,75 [\text{sec}^{-1}]$ unbedingt eine Registrierzeit eingehalten werden von:

$$|\delta_z| = \frac{1,1}{\sqrt{8,75 \cdot t_z}} = 0,003$$

$$t_z = 4,5 \text{ h}$$

Da die Wiederaufarbeitung eine automatische Bestimmung des Abbrandes jeder einzelnen Brennstoffkugel innerhalb von 4 Minuten verlangt, darf die eigentliche Registrierzeit t_n des Spaltproduktspektrums höchstens 3,5 Minuten (= 210 Sekunden) in Anspruch nehmen. Bei der vorliegenden Geometrie der Meßanordnung, einem mittleren Abbrand der Brennstoffkugeln von 3% fima und durchschnittlichen Bestrahlungszeiten von 100 Tagen, beträgt die Zählrate des Cs-Peaks $\dot{n}_{k\lambda} \approx 10 [\text{sec}^{-1}]$. Die Meßwerte zeigten ein Verhältnis von:

$$\frac{\dot{U}_n}{\dot{n}_{k\lambda}} \approx 0,5$$

Der Untergrund-Korrekturfaktor ergibt dann:

$$\sqrt{1 + \frac{2 \dot{u}_n}{\dot{n}_{k\lambda}}} \approx 1,4$$

Hiermit stellt sich ein relativer Fehler ein von:

$$|\delta_n| = \frac{1,4}{\sqrt{10 \cdot 210}} = 0,03$$

Der maximale relative Gesamtfehler in der Abbrandbestimmung mit der derzeitigen Meßanordnung errechnet sich somit nach Gleichung (18) zu:

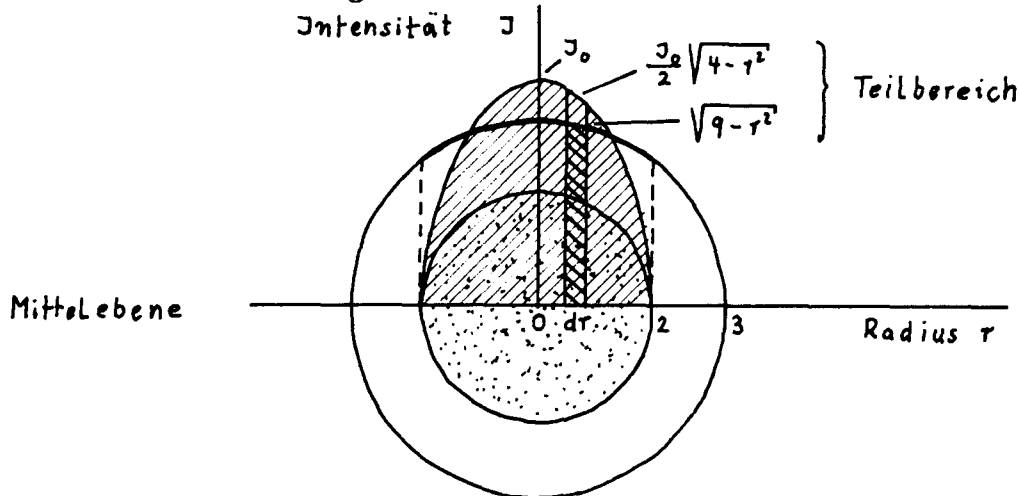
$$\Delta = \pm 8,3 \, \%$$

Durch Änderung der Geometrie kann jedoch erreicht werden, daß sich die Zählraten für die Cs-Peaks erhöhen, was die Genauigkeit entsprechend vergrößert.

Eine Erhöhung der Zählraten um einen Faktor c würde eine Erniedrigung des relativen Fehlers um $\frac{1}{\sqrt{c}}$ bedeuten, was sich besonders auf den Fehler δ_n , aber auch auf die Größe δ_z auswirkt.

Eine weitere Fehlerquelle, die jedoch unabhängig von den bisherigen ist, muß noch berücksichtigt werden. Die radioaktive Substanz besitzt in der Brennstoffkugel im Gegensatz zur Eichkugel, wo sie praktisch punktförmig im Mittelpunkt konzentriert ist, eine große räumliche Verteilung. Deshalb müssen auch die Gammaquanten sehr unterschiedliche Schichtdicken durchdringen. Für eine Abschätzung kann man annehmen, daß die gesamte radioaktive Substanz in der Mittelebene der Kugel konzentriert ist.

Die Flächenbelegung ist allerdings nicht gleichmäßig, sondern vom Rande zur Mittelzone der Kugel stark zunehmend, was durch Projektion der Volumenelemente beider Halbkugeln auf die Mittelebene folgt. Zeichnerisch läßt sich dies durch Addition aller Kugelordinaten darstellen:



Die gestrichelte und die punktierte Fläche sind einander gleich und entsprechen der Gesamtaktivität $A_0(\tau)$ der Brennstoffkugel, nur mit dem Unterschied, daß die gestrichelte Fläche zugleich die Intensitätsverteilung angibt. Hierbei sind alle Flächen rotationssymmetrisch vorzustellen. Die Brennstoffkugel kann nun gedanklich in einzelne gleichmäßig schmale Teilbereiche (Hohlzylinder) aufgegliedert werden. Für diese berechnet man die entsprechenden Schwächungskoeffizienten:

$$e^{-\mu \sqrt{q-r^2}}$$

für Gammastrahlung, wo $\sqrt{q-r^2}$ (Zylinderhöhe)-die von der Strahlung durchdrungene Schichtdicke darstellt. Die Größe μ hängt von dem zu durchstrahlenden Material (Graphit, Dichte $\rho \approx 1,7 \text{ g/cm}^3$) und der Energie der Gammastrahlung (662 keV) ab und ist aus den Tabellen zu entnehmen. Sie besitzt den Wert $\mu = 0,12 \text{ [cm}^{-1}\text{]}$.

Für jeden Teilbereich (Hohlzylinder) der Kugel wird nun die Schwächung des zugehörigen Intensitätsanteils der Gesamtstrahlung durch die dort vorhandene Schichtdicke berechnet. Durch Integration über sämtliche Teilbereiche der Kugel erhält man die Gesamtaborption der in einer Brennstoffkugel vorhandenen Gammastrahlung der Energie 662 keV durch ihre Graphitschicht. Man vergleicht daraufhin diesen Wert mit der Intensitätsschwächung durch eine Graphitkugel (Eichkugel), bei welcher dieselbe Aktivitätsmenge $A_0(\tau)$ jedoch im Mittelpunkt konzentriert ist, also die von der Strahlung zu durchdringenden Schichtdicken überall gleich und maximal sind. Eine rechnerische Abschätzung für die Gesamt-Gamma-Aktivitäten von kugelförmigen Graphitelementen ohne und mit Absorptionsverlusten (Graphitschicht) führt zu folgenden Ergebnissen:

1. Aktivität einer Eich- bzw. Brennstoffkugel (gleicheradioaktive Substanzmenge vorausgesetzt) ohne Absorptionsverluste:

$$(20) \quad A_0(\tau) = \pi J_0 \cdot \int_0^2 r \cdot \sqrt{4-r^2} \cdot dr = 2,67 \cdot \pi J_0$$

2. Aktivität einer Eichkugel mit Absorptionsverlusten:

$$(21) \quad B(\tau) = \pi J_0 \cdot e^{-3/\mu} \cdot \int_0^2 r \cdot \sqrt{4-r^2} \cdot dr = e^{-3/\mu} A_0(\tau) = 1,87 \cdot \pi J_0$$

3. Aktivität einer Brennstoffkugel mit Absorptionsverlusten:

$$(22) \quad A(\tau) = \pi J_0 \cdot \int_0^2 r \cdot \sqrt{4-r^2} \cdot e^{-\mu \sqrt{4-r^2}} \cdot dr = 1,91 \cdot \pi J_0$$

Der prozentuale Aktivitätsverlust einer Brennstoffkugel durch ihre Graphitschicht beträgt für 662 keV-Gammastrahlung

$$100 \cdot \frac{A_0(\tau) - A(\tau)}{A_0(\tau)} = 28,5 \% \approx 29 \%$$

Die prozentuale Aktivitätszunahme bei der angegebenen räumlichen Verteilung der radioaktiven Substanz gegenüber einer punktförmigen Konzentrierung in einem kugelförmigen Graphitelement ist:

$$100 \cdot \frac{A(\tau) - B(\tau)}{B(\tau)} = 2,1 \% \approx 2 \%$$

Es zeigt sich somit, daß die Gesamtaborption der 662 keV-Gammastrahlung durch eine Brennstoffkugel um 2 % geringer ist als durch die Eichkugel. Dieses bedeutet, daß auch die registrierte Zählrate des Cs-Peaks und damit der berechnete Abbrand um 2 % zu hoch liegt.

1.3 Aktivität und Masse

Die Berechnung der Aktivität des Spaltprodukts Cs-137 nach erfolgter Abkühlzeit τ des Brennstoffelements geschieht nach Gleichung (8):

$$(8) \quad A_k(\tau) = \frac{\dot{n}_{k\lambda}}{w_{k\lambda} \cdot p_{k\lambda}}$$

Die Emissionswahrscheinlichkeit $p_{k\lambda}$ und das Ansprechvermögen $w_{k\lambda}$ aus Gleichung (15) können direkt eingesetzt werden:

$$\begin{aligned} p_{k\lambda} &= 0,85 \\ w_{k\lambda} &= 1,18 \cdot \frac{\dot{z}_{k\lambda}}{B_k} \cdot e^{0,0231 \cdot t(y)} \end{aligned}$$

$$(23) \quad \boxed{A_k(\tau) = \frac{\dot{n}_{k\lambda} \cdot B_k}{\dot{z}_{k\lambda}} \cdot e^{-0,0231 \cdot t(y)}}$$

Unter Berücksichtigung der Daten, welche aus der Eichmessung folgen und durch Umrechnung der Aktivität in mCi erhält man:

$$\begin{aligned} B_k &= 328 \text{ mCi} = 1,21 \cdot 10^{10} \text{ [sec}^{-1}\text{]} \\ \dot{z}_{k\lambda} &= 8,75 \text{ [sec}^{-1}\text{]} \\ t &= 1,34 \text{ y} \end{aligned}$$

$$(24) \quad A_k(\tau) = 36,2 \cdot \dot{n}_{k\lambda} \text{ [mCi]}$$

Die Masse des Spaltprodukts Cs-137 nach einer Abkühlzeit τ des Brennstoffelements errechnet sich aus Gleichung (7):

$$A_k(\tau) = N_k \lambda_k \cdot e^{-\lambda_k \tau} = \frac{L}{M_k} m_k \lambda_k \cdot e^{-\lambda_k \tau}$$

$$m_k = \frac{A_k(\tau) \cdot M_k}{L \cdot \lambda_k} \cdot e^{\lambda_k \tau}$$

Durch Einsetzen der bekannten Größen erhält man:

$$\begin{aligned} M_k &= 137 \text{ [g} \cdot \text{mol}^{-1}] \\ \lambda_k &= 7,32 \cdot 10^{-10} \text{ [sec}^{-1}] = 0,0231 \text{ [y}^{-1}] \\ L &= 6,02 \cdot 10^{23} \text{ [mol}^{-1}] \end{aligned}$$

$$(25) \quad m_k = 3,11 \cdot 10^{-13} \cdot A_k(\tau) \cdot e^{0,0231 \cdot \tau(y)}$$

Die Masse wird zweckmäßigerweise in mg ausgedrückt, die Aktivität in mCi der Gleichung (24) entnommen. Obige e-Funktion liefert für Abkühlzeiten $\tau \leq 2,6$ Jahren nur einen kleinen Wertebereich. Dann folgt:

$$(26) \quad m_k = 0,4 \cdot \dot{m}_{k\lambda} \text{ [mg]}$$

Der Fehler, der sowohl bei der Angabe der Aktivität als auch der Masse des Spaltprodukts Cs-137 gemacht wird, ist infolge gleicher Fehlerquellen derselbe und ergibt sich aus der Gleichung (18) durch Fortfall der für die Abbrandbestimmung charakteristischen Größen:

$$(27) \quad \Delta_k = \pm (|\eta_s| + |\eta_a| + |\sigma_n| + |\sigma_z|)$$

Durch Einsetzen der bekannten Fehler ergibt sich:

$$\begin{aligned} \eta_s &= \pm 3,5 \% \\ \eta_a &= \pm 0,5 \% \end{aligned}$$

$$(28) \quad \Delta_k = \pm (0,04 + |\sigma_n| + |\sigma_z|)$$

Weiterhin folgt:

$$\sigma_n = \pm \frac{1}{\sqrt{t_n}} \cdot \frac{\sqrt{\dot{p}_n + \dot{u}_n}}{\dot{p}_n - \dot{u}_n} = \pm \frac{1}{\sqrt{\dot{n}_{k\lambda} \cdot t_n}} \cdot \sqrt{1 + \frac{2 \dot{u}_n}{\dot{n}_{k\lambda}}}$$

$$\sigma_z = \pm \frac{1}{\sqrt{t_z}} \cdot \frac{\sqrt{\dot{p}_z + \dot{u}_z}}{\dot{p}_z - \dot{u}_z} = \pm \frac{1}{\sqrt{\dot{z}_{k\lambda} \cdot t_z}} \cdot \sqrt{1 + \frac{2 \dot{u}_z}{\dot{z}_{k\lambda}}}$$

Unter Berücksichtigung der übrigen ermittelten Größen erhält man für den maximalen relativen Gesamtfehler für die Aktivitäts- und Massenbestimmung:

$$|\sigma_z| = 0,003$$

$$|\sigma_n| = 0,03$$

$$\Delta_k = \pm 7,3 \%$$

1.4 Abschätzung des Neutronenflusses, dem ein Th-U-Brennstoffelement im Reaktor ausgesetzt ist, aus dem Abbrand

Aus der Definition für den Abbrand, Gleichung (1), folgt:

$$f_{ima} = \frac{N_{f3} + N_{f5}}{N_{o2} + N_{o5}} = \frac{N_{f3} + N_{f5}}{N_{o5}(v+1)}$$

wenn das Massenverhältnis vom eingesetzten Th-232 zu U-235 berücksichtigt wird:

$$v = \frac{c_{o2}}{c_{o5}} = \frac{N_{o2}}{N_{o5}} \quad (\text{gilt nur durch Einführung eines Mittelwertes für die Nuklidmassen der Schwermetallnuklide})$$

Index 2 : Th-232

Index 3 : U-233

Index 5 : U-235

Der Neutronenfluß Φ kann nur über den Abbrand "fifa", der sich ausschließlich auf U-235 bezieht, berechnet werden:

$$fifa = \frac{N_{f5}}{N_{o5}} = \frac{N_{o5} - N_{o5}(t_b)}{N_{o5}} = 1 - e^{-\sigma_f \Phi t_b}$$

Die Definitionen fima und fifa können demnach miteinander verknüpft werden:

$$(v+1) \cdot \text{fima} = \frac{N_{f3}}{N_{o5}} + \text{fifa}$$

Eine Abschätzung des Neutronenflusses über den Abbrand fima ist allerdings nur dann auf einfache Weise möglich, wenn der Quotient:

$$\frac{N_{f3}}{N_{o5}} < 0,001$$

ist und sozusagen vernachlässigt werden kann. Bei Abbränden "fifa" ≤ 50 % ist diese Bedingung gut erfüllt:

$$(v+1) \cdot \text{fima} = \text{fifa}$$

Aus der Definition:

$$\text{fifa \%} = 100 \cdot (1 - e^{-\sigma_f \Phi t_b})$$

kann der Fluß bestimmt werden:

$$e^{-\sigma_f \Phi t_b} = \frac{100 - \text{fifa \%}}{100}$$

$$\sigma_f \Phi t_b = -\ln\left(\frac{100 - \text{fifa \%}}{100}\right) = \ln 100 - \ln(100 - \text{fifa \%})$$

$$\Phi = \frac{4,6 - \ln(100 - \text{fifa \%})}{\sigma_f t_b}$$

Berechnungen zeigten, daß in dem definierten thermischen Energiebereich, $E \leq 1,9$ eV, ca. 90 % aller U-235 Kerne gespalten werden. Der in diesem Energiebereich gültige mittlere (thermische) Spaltquerschnitt für U-235 hat den Wert:

$$\sigma_f = 227 \text{ barn} = 227 \cdot 10^{-24} [\text{cm}^2] \quad (\text{Angabe der BBK Mannheim})$$

Die Bestrahlungszeit t_b wird in Tagen ausgedrückt und man erhält: $t_b [\text{sec}] = 8,64 \cdot 10^4 t_b [\text{d}]$

$$(29) \quad \Phi = \frac{4,6 - \ln(100 - \text{fifa \%})}{2 \cdot 10^{-17} t_b [\text{d}]} [\text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}]$$

Der Wert Φ liefert deshalb einen mittleren thermischen Neutronenfluß im Energiebereich $E \leq 1,9$ eV bei Abbränden ≤ 50 % fifa (bzw. $\leq 8,2$ % fima für das Verhältnis $v = 5$).

Zur Genauigkeit von Φ kann keine Aussage gemacht werden, da eine Fehlerangabe für den mittleren thermischen Spaltquerschnitt σ_f nicht vorliegt. Aus diesem Grunde wird der Fluß Φ lediglich auf zwei Stellen angegeben.

2.0 Bestimmung der Aktivität und Masse einzelner Nuklide aus der Intensität ihrer Gammalinien im Spaltproduktspektrum

2.1 Aktivität der Nuklide

Die Gammaaktivität aller gebildeten Nuklide einer bestimmten Sorte k (etwa Zr-95) nach einer gewissen Abkühlzeit τ eines Brennstoffelements kann meßtechnisch aus Gleichung (8) gewonnen werden:

$$(8) \quad A_k(\tau) = \frac{\dot{n}_{k\lambda}}{w_{k\lambda} \cdot p_{k\lambda}}$$

Das Ansprechvermögen, das mit Hilfe eines Eichpräparats experimentell ermittelt wird, läßt sich aus Gleichung (14) berechnen:

$$(14) \quad w_{s\lambda} = \frac{\dot{z}_{s\lambda}}{p_{s\lambda} \cdot B_s} \cdot e^{\lambda_s t}$$

Als Eichnuklid sollte, um unnötige Fehlerquellen zu umgehen, das gleiche Nuklid (Index $s = k$) verwendet werden, welches auch aus dem Gammaspektrum bestimmt wird.

$$(31) \quad w_{k\lambda} = \frac{\dot{z}_{k\lambda}}{p_{k\lambda} \cdot B_k} \cdot e^{\lambda_k t}$$

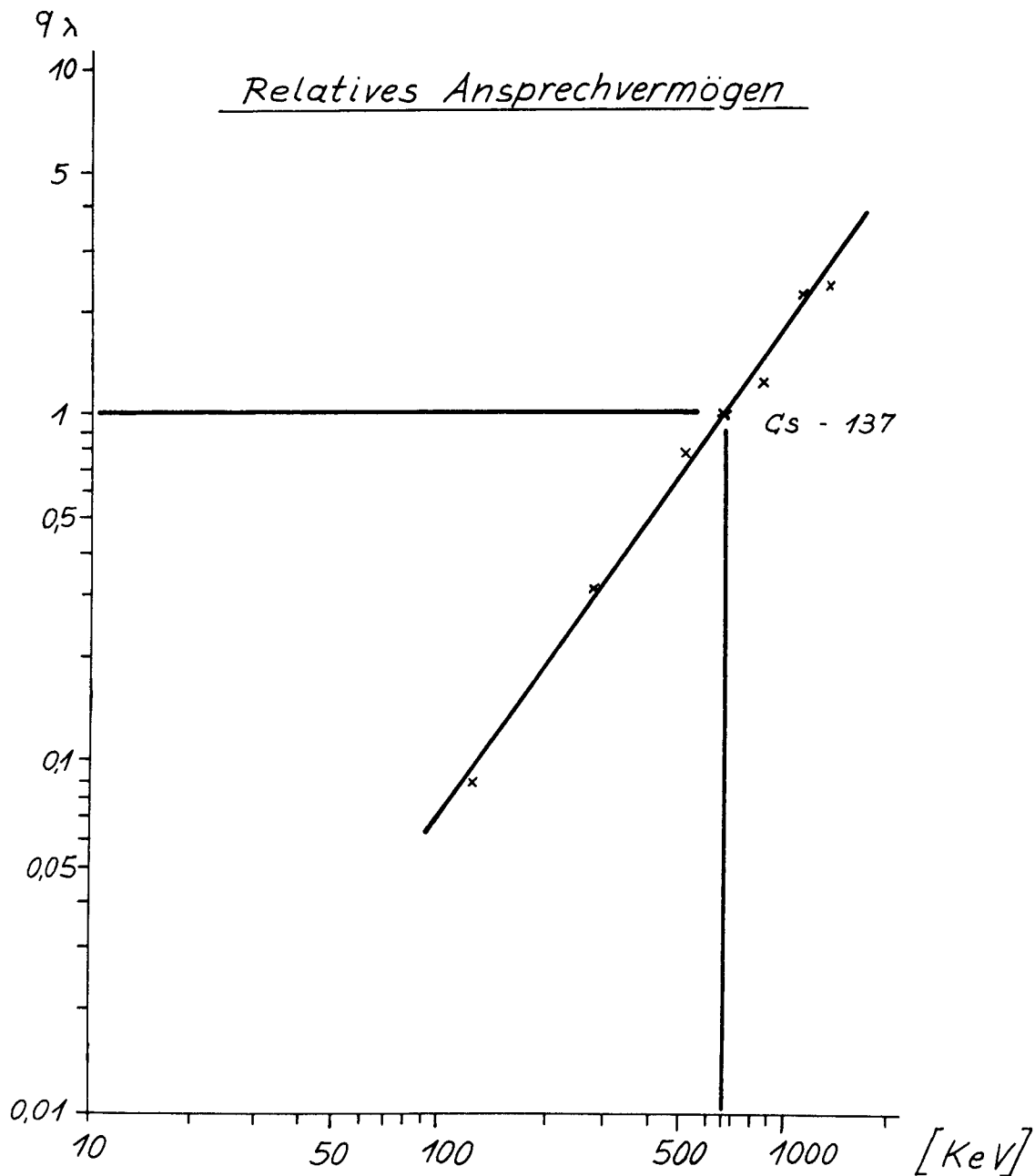
Setzt man die Gleichung (31) in die Gleichung (8) für die Aktivität ein, so folgt:

$$(32) \quad A_k(\tau) = \left(\frac{B_k}{\dot{z}_{k\lambda}} \cdot e^{-\lambda_k t} \right) \cdot \dot{n}_{k\lambda}$$

Der Ausdruck in der runden Klammer bezieht sich nur auf die Eichung der Meßanlage, wobei die Energieabhängigkeit des Ansprechvermögens durch die Größe $\dot{z}_{k\lambda}$ mit in Erscheinung tritt.

Da bisher entsprechende Eichpräparate genügend hoher Aktivität (mindestens 300 mCi) und Genauigkeit (mindestens $\pm 5\%$) außer Cs-137 nicht zur Verfügung standen, wurde das Ansprech-

vermögen für die einzelnen Gammalinien bzw. -Energien auf die 662 keV-Linie des Nuklids Cs-137 bezogen. Hierfür ist jedoch die Kenntnis der Energieabhängigkeit des Ansprechvermögens notwendig. Diese konnte nur mit Hilfe einer Reihe schwach aktiver Standardpräparate (Größenordnung $10 \mu\text{Ci}$) experimentell ermittelt werden, wobei ihre Entfernung zum Detektor 10 cm betrug. Auf doppelt logarithmischem Papier aufgetragen ergibt dies eine Gerade (siehe Abbildung). Für die Bezugsenergie 662 keV (Cs-137) wird zweckmäßigerweise das Ansprechvermögen gleich 1 gesetzt, so daß die Gerade nur Relativwerte, mit q_λ bezeichnet, wiedergibt.



Da die von den Brennstoffkugeln ausgehende Gammastrahlung außerordentlich stark ist, wird auch über sehr große Entfernungen (ca. 300 cm) mit dem Detektor gemessen. Besonders muß berücksichtigt werden, daß Streuungen und Absorptionen an den die Strahlung umgebenden und begrenzenden (Kollimator) Materialien, vor allem nach niedrigen Energien hin, nicht unerheblich sind. Dies führt in Wirklichkeit zu einer Abweichung vom geradlinigen Verlauf des Ansprechvermögens. Solange keine entsprechenden Standpräparate genügend hoher Aktivität (ca. 300 mCi) für einen Energiebereich von 100 - 500 keV zur Verfügung stehen, mit deren Hilfe diese Abweichung festgestellt werden kann, sollten Nuklide, deren Gammaenergien unterhalb etwa 500 keV liegen, nicht ausgewertet werden, da dies zu falschen Ergebnissen führt.

Das Ansprechvermögen $w_{k\lambda}$ für die Gammalinie λ keV des zu untersuchenden Nuklids k im Brennstoff ist nunmehr das Produkt aus dem relativen Ansprechvermögen q_λ mit dem Ansprechvermögen $w_{s\lambda}$ für die Bezugsenergie 662 keV des Standardnuklids Cs-137:

$$w_{k\lambda} = q_\lambda \cdot w_{s\lambda}$$

Für die Bezugsenergie wird in Gleichung (14) der Index $\lambda = 0$ gesetzt. Dann folgt:

$$(33) \quad w_{k\lambda} = q_\lambda \cdot \frac{\dot{z}_{s0}}{p_{s0} \cdot B_s} \cdot e^{\lambda_s t}$$

Durch Einsetzen der Gleichung (33) in die Gleichung (8) erhält man, unter Berücksichtigung der bekannten Größen für das Standardnuklid Cs-137:

$$\begin{aligned} p_{s0} &= 0,85 \\ \lambda_s &= 0,0231 \text{ [y}^{-1}\text{]} \end{aligned}$$

$$(34) \quad A_k(\tau) = 0,85 \cdot \left[\frac{1}{p_{k\lambda} \cdot q_\lambda} \right] \cdot \left(\frac{B_s}{\dot{z}_{s0}} e^{-0,0231 \cdot t(y)} \right) \cdot \dot{n}_{k\lambda}$$

Der Ausdruck in der eckigen Klammer läßt sich berechnen, da die Emissionswahrscheinlichkeit $p_{k\lambda}$ aus Tabellen und das relative Ansprechvermögen q_λ aus dem Diagramm zu entnehmen sind.

Der Ausdruck in der runden Klammer bezieht sich auf die Eichung der Meßanlage und ergibt durch Einsetzen der von der PTB angegebenen und selbst gemessenen Werte:

$$\begin{aligned} B_s &= 328 \text{ mCi} = 1,21 \cdot 10^{10} [\text{sec}^{-1}] \\ t &= 488 \text{ d} = 1,34 \text{ y} \\ \dot{z}_{so} &= 8,75 [\text{sec}^{-1}] \end{aligned}$$

$$\left(\frac{B_s}{\dot{z}_{so}} e^{-0,0231 \cdot t(\text{y})} \right) = 1,34 \cdot 10^9$$

Zweckmäßigerweise wird die Aktivität in mCi ausgedrückt und man erhält aus Gleichung (34)

$$(35) \quad A_k(\tau) = 30,8 \cdot \left[\frac{1}{p_{k\lambda} \cdot q_\lambda} \right] \cdot \dot{n}_{k\lambda} [\text{mCi}]$$

Die Werte $\left[\frac{1}{p_{k\lambda} \cdot q_\lambda} \right]$ können aus der anschließenden Tabelle für jedes Nuklid entnommen werden.

2.2 Masse der Nuklide

Die Masse der Nuklide nach einer Abkühlzeit τ des Brennstoffelements errechnet sich aus der Gleichung (7):

$$A_k(\tau) = N_k \lambda_k \cdot e^{-\lambda_k \tau} = \frac{L}{M_k} m_k \lambda_k \cdot e^{-\lambda_k \tau}$$

$$m_k = \frac{A_k(\tau) \cdot M_k}{L \cdot \lambda_k} \cdot e^{\lambda_k \tau}$$

Durch Einsetzen von $L = 6,02 \cdot 10^{23} [\text{mol}^{-1}]$ erhält man:

$$(36) \quad m_k = 1,66 \cdot 10^{-24} \cdot \left[\frac{M_k}{\lambda_k} \right] \cdot A_k(\tau) \cdot e^{\lambda_k \tau}$$

Die Masse wird in mg ausgedrückt, die Zerfallskonstante in d^{-1} (λ^*) und die Aktivität in mCi der Gleichung (35) entnommen. Dann ergibt sich:

$$(37) \quad m_k = 5,31 \cdot 10^{-9} \cdot \left[\frac{M_k}{\lambda_k^*} \right] \cdot A_k(\tau) \cdot e^{\lambda_k^* \tau} [\text{mg}]$$

Für die e-Funktion dürfen hier keine vereinfachenden Annahmen gemacht werden, da ihre Werte weit über 1 liegen können und infolge der unterschiedlichen Zerfallsgeschwindigkeiten der Nuklide auch stark variieren. Schon bei einer Abkühlzeit von $\tau = 100$ Tagen ergibt sich für das relativ schnell zerfallende Nuklid Nb-95 mit seiner Konstanten $\lambda_k \approx 0,02 [\text{d}^{-1}]$, ein Faktor von $e^2 \approx 7$. Die Werte $\left[\frac{M_k}{\lambda_k^*} \right]$ können aus der folgenden Tabelle für jedes Nuklid entnommen werden.

2.3 Fehlerbetrachtung

Der maximale relative Gesamtfehler in der Aktivitäts- und Massenbestimmung ist infolge gleicher Fehlerquellen derselbe und ergibt sich aus Gleichung (27) jedoch durch Hinzufügung einer weiteren Größe:

η_q = Fehler in der Angabe des relativen Ansprechvermögens

$$(38) \quad \Delta_k = \pm \left(|\eta_s| + |\eta_a| + |\eta_q| + |\sigma_n| + |\sigma_z| \right)$$

Nuklid	keV	$P_{k\lambda} \%$	q_λ	$\left[\frac{1}{P_{k\lambda} \cdot q_\lambda}\right]$	$\lambda_k^* (d^{-1})$	$\left[\frac{M_k}{\lambda_k^*}\right] (g \cdot d^{-1})$
Nb-95	765	100	1,20	0,83	$1,98 \cdot 10^{-2}$	$4,80 \cdot 10^3$
Zr-95	756	49	1,18	1,73	$1,07 \cdot 10^{-2}$	$8,88 \cdot 10^3$
Zr-95	724	49	1,10	1,86	$1,07 \cdot 10^{-2}$	$8,88 \cdot 10^3$
Cs-134	796	99	1,25	0,81	$9,26 \cdot 10^{-4}$	$1,45 \cdot 10^5$
Cs-134	605	98	0,86	1,19	$9,26 \cdot 10^{-4}$	$1,45 \cdot 10^5$
Pr-144	695	1,5	1,05	63,49	$2,44 \cdot 10^{-3}$	$5,90 \cdot 10^4$
Cs-137	662	85	1,00	1,18	$6,33 \cdot 10^{-5}$	$2,16 \cdot 10^6$
Ru-106	512	21	0,69	6,90	$1,90 \cdot 10^{-3}$	$5,58 \cdot 10^4$
Ru-106	622	11	0,90	10,10	$1,90 \cdot 10^{-3}$	$5,58 \cdot 10^4$
La-140	487	40	0,65	3,85	$5,41 \cdot 10^{-2}$	$2,59 \cdot 10^3$
Ba-140	537	34	0,73	4,03	$5,41 \cdot 10^{-2}$	$2,59 \cdot 10^3$
Ru-103	497	88	0,67	1,70	$1,75 \cdot 10^{-2}$	$5,89 \cdot 10^3$
Pa-233*	312	44	-	-	$2,57 \cdot 10^{-2}$	$9,07 \cdot 10^3$
Ce-141	145	48	-	-	$2,13 \cdot 10^{-2}$	$6,62 \cdot 10^3$
Ce-144	134	11	-	-	$2,44 \cdot 10^{-3}$	$5,90 \cdot 10^4$

Die Fehlergrößen sind im Einzelnen:

$$\begin{aligned}
 \eta_s &= \pm 3,5 \% \\
 \eta_a &= \pm 0,5 \% \\
 \eta_q &= \pm 10 \% \text{ (oberhalb 500 keV)}
 \end{aligned}$$

Daraus ergibt sich:

$$(39) \quad \Delta_k = \pm (0,14 + |\delta_n| + |\delta_z|)$$

* Schwermetall-Nuklid

Für die statistischen Fehler wird angesetzt:

$$\sigma_n = \pm \frac{1}{\sqrt{t_n}} \cdot \frac{\sqrt{\dot{p}_n + \dot{u}_n}}{\dot{p}_n - \dot{u}_n} = \pm \frac{1}{\sqrt{\dot{n}_{k\lambda} \cdot t_n}} \cdot \sqrt{1 + \frac{2 \dot{u}_n}{\dot{n}_{k\lambda}}}$$

$$\sigma_z = \pm \frac{1}{\sqrt{t_z}} \cdot \frac{\sqrt{\dot{p}_z + \dot{u}_z}}{\dot{p}_z - \dot{u}_z} = \pm \frac{1}{\sqrt{\dot{z}_{k\lambda} \cdot t_z}} \cdot \sqrt{1 + \frac{2 \dot{u}_z}{\dot{z}_{k\lambda}}}$$

Man wird bestrebt sein, vor allem die Eichmessung sehr genau durchzuführen, da sie als Grundlage für alle weiteren Betrachtungen dient.

Da die PTB als Genauigkeit für die Anfangsaktivität des Standardnuklids Cs-137 den Wert $\eta_s = \pm 3,5 \%$ angibt, scheint es gerechtfertigt, daß der relative Fehler der Zählrate mindestens $\sigma_z = \pm 0,3 \%$ betragen soll. Dies kann ohne weiteres durch entsprechend lange Registrierzeit t_z des Eichspektrums erzielt werden. Aus den Eichmessungen folgte für das Verhältnis $\frac{\dot{u}_z}{\dot{z}_{k\lambda}} \approx 0,1$, woraus sich für den Untergrund-Korrekturfaktor ergibt:

$$\sqrt{1 + \frac{2 \dot{u}_z}{\dot{z}_{k\lambda}}} \approx 1,1$$

Bei einem relativen Fehler von $\sigma_z = \pm 0,3 \%$ und der ermittelten Zählrate von $\dot{z}_{k\lambda} = 8,75 \text{ [sec}^{-1}\text{]}$ muß eine Registrierzeit eingehalten werden von:

$$|\sigma_z| = \frac{1,1}{\sqrt{8,75 \cdot t_z}} = 0,003$$

$$t_z = 4,5 \text{ h}$$

Die Registrierzeit des Spaltproduktspektrums t_n ist natürlich für alle zu untersuchenden Nuklide dieselbe, deshalb hängt die Genauigkeitsangabe σ_n für die einzelnen Nuklide untereinander, von der Größe ihrer gemessenen Zählraten $\dot{n}_{k\lambda}, \dot{u}_n$ ab. Da bei der Auswertung der einzelnen Peaks sich äußerst unterschiedliche Werte für das Verhältnis $\frac{\dot{u}_n}{\dot{n}_{k\lambda}}$ zeigen, ist auch der Untergrund-Korrekturfaktor großen Schwankungen unterworfen.

Bei einer Registrierzeit von $t_n = 3,5$ Minuten und der intensitätsschwächsten Linie mit einer Zählrate von $\dot{n}_{k\lambda} = 1$ $[\text{sec}^{-1}]$, sowie dem ungünstigsten Verhältnis $\frac{\dot{u}_n}{\dot{n}_{k\lambda}} \gg 1$, kann für den relativen Fehler angesetzt werden:

$$|\sigma_n| = \frac{1}{\sqrt{210}} \cdot \sqrt{2 \dot{u}_n} \approx 0,1 \cdot \sqrt{\dot{u}_n}$$

Hiermit ist also ein maximaler relativer Gesamtfehler in der Aktivitäts- bzw. Massenbestimmung zu erzielen von:

$$\Delta_k = \pm (14,3 + 10 \cdot \sqrt{\dot{u}_n}) \%$$

Als nächstes muß unbedingt berücksichtigt werden, daß die radioaktive Substanz in der Brennstoffkugel im Gegensatz zur Eichkugel eine große räumliche Verteilung besitzt. Es bedarf daher einer gewissen Korrektur, da die Meßwerte nicht ohne weiteres miteinander verglichen werden dürfen. Die aufgestellten Gleichungen (20), (21) und (22) finden auch für dieses Problem Anwendung. Eine, speziell in den beiden Gleichungen (21) und (22) vorkommende Größe, der sogenannte Schwächungskoeffizient μ , bleibt jedoch wegen seiner Energieabhängigkeit nicht konstant:

$$(20) \quad A_o(\tau) = 2,67 \cdot \pi J_o$$

$$(21) \quad B(\tau) = 2,67 \cdot e^{-3\mu} \cdot \pi J_o$$

$$(22) \quad A(\tau) = H(\tau, \mu) \cdot \pi J_o$$

Mit $H(\tau, \mu)$ wird das von r und μ abhängige Integral bezeichnet.

Die Dichte der durchstrahlten Graphitschicht kann mit

$$\rho \approx 1,7 \text{ [g} \cdot \text{cm}^{-3}\text{]}$$

angenommen werden. Der Energiebereich der zu untersuchenden Nuklide reicht von 500 bis 800 keV. Daraus ergibt sich für

den Schwächungskoeffizienten μ ein schmaler Wertebereich von 0,11 bis 0,13 $[\text{cm}^{-1}]$.

Der prozentuale Aktivitätsverlust durch die Graphitschicht:

$$100 \cdot \frac{A_0(\tau) - A(\tau)}{A_0(\tau)} = 100 - 37,5 \cdot H$$

liegt dann zwischen 27 % und 31 %. Die prozentuale Aktivitätszunahme durch die räumliche Verteilung der radioaktiven Substanz:

$$100 \cdot \frac{A(\tau) - B(\tau)}{B(\tau)} = 37,5 \cdot H \cdot e^{\frac{3}{\mu}} - 100$$

beträgt in den angegebenen Grenzen ca. 2 %.

3.0 Grenzen und Leistungsfähigkeit der gammaspektrometrischen Methode zur zerstörungsfreien Abbrand- und Nuklidbestimmung

Die Leistungsfähigkeit der beschriebenen gammaspektrometrischen Methode hängt einerseits von den konstanten Fehlergrößen ab, die in die Berechnungen eingehen, andererseits von der Fähigkeit des Gammaskontrometers, nur eine maximale Anzahl eintreffender Signale ohne Fehler verarbeiten zu können.

3.1 Abbrandbestimmung

Die in Gleichung (18), für den Maximalfehler des Abbrandes, vorherrschende konstante Fehlergröße (η) ist diejenige, welche die Genauigkeit der Aktivität des Standardnuklids Cs-137 angibt. Ihr Wert ist $\eta_s = \pm 3,5 \%$. Unter erheblichem finanziellen und meßtechnischem Einsatz könnte, wenn unbedingt erforderlich, dieser auf $\pm 1 \%$ reduziert werden.

Damit erhält man, unter Berücksichtigung des normalerweise angewandten Fehlerfortpflanzungsgesetzes, welches einen gewissen Ausgleich der einzelnen Fehler berücksichtigt, einen mittleren relativen Fehler aller konstanten Größen von:

$$\sqrt{\eta_y^2 + \eta_m^2 + \eta_s^2 + \eta_a^2} \approx 1,5 \%$$

Die Elektronik der Meßapparatur kann nur eine begrenzte Anzahl von Impulsen pro Sekunde verarbeiten, ohne größere zeitliche Verzögerungen durch automatische Totzeitkorrekturen auszulösen und die Energieauflösung zu verschlechtern.

Die maximale Impulsrate kann mit ≈ 9000 Impulsen pro Sekunde angesetzt werden. Bisherige Messungen ergaben, daß der Cs-Peak etwa 1/150 der Impulse des Gesamtspektrums ausmacht. Das bedeutet, daß die maximale Impulsrate des Cs-Peaks bei ≈ 60 Impulsen pro Sekunde liegt.

Der statistische Fehler in der Impulsrate beträgt:

$$\sigma_n = \pm \frac{1}{\sqrt{\dot{n}_{k\lambda} \cdot t_n}} \cdot \sqrt{1 + \frac{2 \dot{u}_n}{\dot{n}_{k\lambda}}}$$

Wird hierin der Durchschnittswert des Verhältnisses $\frac{\dot{u}_n}{\dot{n}_{k\lambda}} \approx 0,5$ und die Impulsrate $\dot{n}_{k\lambda} = 60$ eingesetzt, so erhält man, wenn die Registrierzeit t_n in Minuten angegeben werden soll:

$$\sigma_n = \pm \frac{0,023}{\sqrt{t_n}}$$

Die Abhängigkeit des statistischen Fehlers σ_n von der Registrierzeit t_n ist in dem folgenden Diagramm zu sehen.

Ganz anders liegen die Verhältnisse bei der Eichung der Meßanlage. Hier ist der Cs-Peak des verwendeten Eichpräparats vergleichbar mit der Impulszahl des Gesamtspektrums, da ja alle anderen Nuklide fehlen und kein derartiger Streuungsuntergrund vorhanden ist. Das heißt, es wird zwar die Elektronik nicht bis an ihr Fassungsvermögen (≈ 9000 Impulse pro Sekunde) herangebracht, aber die für den statistischen Fehler maßgebende Impulszahl des Cs-Peaks kann hier wegen der praktisch unbegrenzten Registrierzeit t_z weit höher liegen.

Der statistische Fehler in der Impulsrate beträgt:

$$\sigma_z = \pm \frac{1}{\sqrt{\dot{z}_{k\lambda} \cdot t_z}} \cdot \sqrt{1 + \frac{2 \dot{u}_z}{\dot{z}_{k\lambda}}}$$

Die Messungen zeigen als Verhältnis $\frac{\dot{u}_z}{\dot{z}_{k\lambda}} \approx 0,1$. Bei einer Registrierzeit von $t_z = 5$ h und einer Impulsrate von $\dot{z}_{k\lambda} \approx 100$ Impulsen pro Sekunde, die durch entsprechende Geometrie und Verwendung eines im Curie-Bereich liegenden Eichpräparates erhalten werden kann, wird die Impulszahl auf $\approx 2 \cdot 10^6$ anwachsen. Man erhält dann einen relativen statistischen Fehler von:

$$\sigma_z \approx \pm 0,1 \%$$

$\sigma_n \%$

5,0

4,0

3,0

2,0

1,0

0

Abhängigkeit des statistischen
Fehlers von der Registrierzeit
-bei maximaler Impulsrate.

$t_n [m]$

8

7

6

5

4

3

2

1

0

0

Bei einer Registrierzeit des Spaltproduktspektrums von 4 Minuten (wie es die Wiederaufarbeitung maximal verlangt), einer optimal ausgelegten Meßgeometrie, sowie der Verwendung eines Eichpräparats von $\pm 1 \%$ Genauigkeit und ≈ 1 Ci Aktivität, kann auf Grund des Fehlerfortpflanzungsgesetzes eine bessere Genauigkeit für die zerstörungsfreie Abbrandbestimmung von

$$\Delta = \pm 2 \%$$

niemals erreicht werden.

3.2 Nuklidbestimmung

In der Gleichung (38) für den maximalen Gesamtfehler in der Aktivitätsbestimmung entfallen die für die Abbrandbestimmung typischen Fehlergrößen. Dafür tritt eine neue Größe hinzu, die unter den derzeitigen Bedingungen sehr starken Einfluß hat. Es ist die Genauigkeit in der Angabe des relativen Ansprechvermögens q_λ . Mit Hilfe geeigneter Eichpräparate wird es immer möglich sein, einen genaueren Kurvenverlauf für die Energieabhängigkeit des relativen Ansprechvermögens zu erhalten. Da aber von Natur aus diese Kurve für einen größeren Energiebereich eine exakte Zuordnung nicht liefert, wird man da, wo die Identifizierung einzelner Nuklide nicht mehr nötig ist, die Eichmessung für jedes Nuklid getrennt (ohne Benutzung der Kurve, d. h. des relativen Ansprechvermögens) vornehmen.

Ist man jedoch auf die Identifizierung einzelner Nuklide angewiesen, wird man auf eine solche experimentell gewonnene graphische Darstellung des relativen Ansprechvermögens nicht verzichten können. Bei vorsichtiger Schätzung muß den einzelnen Kurvenwerten dennoch eine Genauigkeit von $\eta_q \approx \pm 5 \%$ zugesprochen werden.

Unabhängig davon können die einzelnen Eichmessungen immer so durchgeführt werden, daß ein relativer statistischer Fehler von

$$\sigma_z \approx \pm 0,1 \%$$

gewährleistet ist.

Als 'mittleren' relativen Fehler in der Aktivitätsbestimmung der erst aus dem Spaltproduktspektrum zu identifizierenden Nuklide erhält man:

$$\sqrt{\eta_s^2 + \eta_a^2 + \eta_g^2 + \sigma_z^2 + \sigma_n^2} \approx 5,5 \% + |\sigma_n|$$

Wird dagegen die Aktivität bekannter Nuklide untersucht, so reduziert sich der 'mittlere' relative Fehler auf:

$$\sqrt{\eta_s^2 + \eta_a^2 + \sigma_z^2 + \sigma_n^2} \approx 1,5 \% + |\sigma_n|$$

Eine generelle Abschätzung des relativen statistischen Fehlers σ_n ist hier nicht möglich, da dieser, infolge äußerst unterschiedlicher Zählraten von Peak und Untergrund, zu stark variiert. Für besonders intensitätsreine Linien mit verhältnismäßig geringem Untergrund, die vor allem bei höheren Energien vorherrschend sind, kann man den Ausdruck:

$$\sigma_n = \pm \frac{1}{\sqrt{\dot{n}_{k\lambda} \cdot t_n}} \cdot \sqrt{1 + \frac{2 \dot{u}_n}{\dot{n}_{k\lambda}}}$$

unter Berücksichtigung einer Meßzeit von $t_n = 4$ Minuten und einem Erfahrungswert für das Verhältnis $\frac{2 \dot{u}_n}{\dot{n}_{k\lambda}} \approx 1$, entsprechend vereinfachen:

$$\sigma_n \approx \pm \frac{1}{\sqrt{2 \dot{n}_{k\lambda}}}$$

Tabelle der gamma-aktiven Spaltprodukt nuklide

In dieser Tabelle sind nach dem neuesten Stand (siehe Literaturangabe) alle für die Wiederaufarbeitung von Th-U-Kernbrennstoffen interessierenden gamma-aktiven Spaltprodukt nuklide des U-235 und U-233 angeführt. Berücksichtigt sind deshalb nur solche Nuklide, welche Halbwertszeiten ≥ 1 Tag besitzen und außerdem in Massenkett en stehen, die eine Ausbeute $> 0,001$ % aufweisen.

Die Zusammenstellung erfolgt nach steigender Kernladungszahl (Ordnungszahl) der betreffenden Nuklide. Weiterhin sind nur die intensitätsreichsten 'Linien', maximal 8, als ausreichend angesehen worden.

Literaturangabe:

1. Table of Isotops - Lederer, Hollander, Perlman
John Wiley Verlag - New York - 1967
2. Zur Behandlung der Spaltprodukte in Abbrandrechnungen unter Berücksichtigung neuer nuklearer Daten angewandt auf Graphitreaktoren - Yosen Liu
Jül-Report-678-RG - Juli 1970
3. Table of specific Gamma-Ray-Constants - Nachtigal
Karl Thiemig Verlag - 1969
4. Gammaenergie-Tabellen zur Aktivierungsanalyse - Meixner
Karl Thiemig Verlag - 1970

Erläuterungen zur Tabelle:

Spalte 1 (Nuklide)

Die maßgebenden Nuklide, auf welche sich die Linienenergien beziehen, stehen im oberen Teil des Rechtecks. Der Index T bezeichnet das Tochternuklid, der Index m einen isomeren Zustand.

Spalte 2 (Energie, Emissionswahrscheinlichkeit)

Die Emissionswahrscheinlichkeiten (Intensitäten) sind Absolutwerte für reine Gammaemission. Der Wert 0 bedeutet, daß für die zugehörige Energie die Intensität nicht bekannt ist. Der Index * bezeichnet relative Intensitäten.

Spalte 3 und 4 (Halbwertszeit, Zerfallskonstante)

Die Halbwertszeiten und Zerfallskonstanten sind in Tagen (d) angegeben. Der Wert 0 bezeichnet Halbwertszeiten < 1 d, die vernachlässigt werden können. Das Zeichen » bedeutet entsprechend eine sehr große Zerfallskonstante.

Spalte 5 und 6 (Uran-Spaltausbeuten)

Die beiden wesentlichsten Spaltstoffe sind U-235 und U-233. Im Vergleich hierzu kann Pu-239 vernachlässigt werden, da sein Anteil um einige Größenordnungen geringer ist.

Für die Spalttausbeuten gibt es 3 verschiedene Definitionen:

1. die Massenausbeute (totale Kettenausbeute) Y_t . Sie ist die gesamte Ausbeute aller Glieder einer Massenkette.
2. die kumulierte Spalttausbeute Y_c . Sie ist die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Spaltprodukt sowohl direkt durch Spaltung als auch durch β -Zerfall seiner Vorgänger entsteht.
3. die unabhängige Spalttausbeute Y_i . Sie ist die Wahrscheinlichkeit für die direkte Bildung dieses Nuklids bei der Spaltung.

Nuklid	Energie in keV Emissionswahrscheinlichkeit in %								T (d)	$\lambda (d^{-1})$	Uran	Spaltausbeuten in %		
												Y_t	Y_c	Y_i
As-76	559 43	657 6	775 0,2	1216 5	1229 0,4	1438 0,7	1789 0,3	2098 0,9	1,1	$6,30 \cdot 10^{-1}$	U-235 U-233	0,0035 0,0068		
As-77	86 0,1	161 0,3	239 2,5	522 0,8					1,6	$4,33 \cdot 10^{-1}$	U-235 U-233	0,008 0,02		0,0049 0,009
Br-82	554 66	619 41	698 27	777 83	828 25	1044 29	1317 26	1475 17	1,5	$4,62 \cdot 10^{-1}$	U-235 U-233	0,35 0,7		$4 \cdot 10^{-6}$ $1,7 \cdot 10^{-6}$
Kr-85	514 0,4								$3,942 \cdot 10^{-3}$ [10,8y]	$1,76 \cdot 10^{-4}$	U-235 U-233	1,38 2,46	0,273 0,484	$2,4 \cdot 10^{-5}$ $1,92 \cdot 10^{-4}$
Rb-86	1078 8,8								18,7	$3,71 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	1,81 2,74		
Y-89m ----- Sr-89 ^{B-}	913 99								0 ----- 52,7	\gg ----- $1,31 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	4,73 6,28		
Y-91	1210 0,3								58,8	$1,18 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	6,30 7,17		0,04 0,045
Zr-95	235 0,8	724 49	756 49						65	$1,07 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	6,55 6,22	6,2 6	

Tabelle 1

Nuklid	Energie in keV Emissionswahrscheinlichkeit in %								T(d)	$\lambda(d^{-1})$	Uran	Spaltausbeuten in %		
												Y_t	Y_c	Y_i
Nb-93m	30								$4,964 \cdot 10^{-3}$	$1,40 \cdot 10^{-4}$	U-235	6,51		
	0,01								[13,6 y]		U-233	7,02		
Nb-94	702	871							$7,3 \cdot 10^6$	$9,49 \cdot 10^{-8}$	U-235	6,55		
	100	100							$[2 \cdot 10^4 \text{ y}]$		U-233	6,7		
Nb-95 ^T	765								35	$1,98 \cdot 10^{-2}$	U-235	6,55		
Nb-95m	100								3,8	$1,82 \cdot 10^{-1}$	U-233	6,22		
Nb-95m ^T	235								3,8	$1,82 \cdot 10^{-1}$	U-235	6,55		$2,62 \cdot 10^{-4}$
Zr-95	0,8								65	$1,07 \cdot 10^{-2}$	U-233	6,22		0,00187
Mo-99	41	181	372	740	780	930			2,8	$2,48 \cdot 10^{-1}$	U-235	6,25		
	2	7	1	12	4	0,4					U-233	4,96		
Tc-98	669	770							$5,475 \cdot 10^8$	$1,27 \cdot 10^{-9}$	U-235	5,93		
	100	100							$[1,5 \cdot 10^6 \text{ y}]$		U-233	5,25		
Tc-99m ^T	140								0	»	U-235	6,25		
Mo-99	90								2,8	$2,48 \cdot 10^{-1}$	U-233	4,96		
Ru-103	53	298	360	497	557	610			39,6	$1,75 \cdot 10^{-2}$	U-235	2,9		
	0,8	1,1	0,9	88	0,8	6					U-233	1,6		

Tabelle 2

Nuklid	Energie in keV Emissionswahrscheinlichkeit in %								T (d)	$\lambda (d^{-1})$	Uran	Spaltausbeuten in %		
												Y_t	Y_c	Y_i
Rh-106	512	622	1050	1130	1550				0	\gg	U-235	0,305		
Ru-106 β^-	21	11	1,5	0,5	0,2				$\frac{365}{[1 \text{ y}]}$	$1,90 \cdot 10^{-3}$	U-233	0,255		
Rh-103m T	40								0	\gg	U-235	2,9		
Ru-103	0,4								39,6	$1,75 \cdot 10^{-2}$	U-233	1,6		
Rh-105	306 5	319 19	443 0,04						1,5	$4,62 \cdot 10^{-1}$	U-235 U-233	0,9 0,5		0,02
Ag-110 T	658	1476							0	\gg	U-235	0,02		
Ag-110m	4,5	0,02							253	$2,74 \cdot 10^{-3}$	U-233	0,03		
Ag-110m	658 96	687 16	706 19	764 23	885 71	937 32	1384 21	1505 11	253	$2,74 \cdot 10^{-3}$	U-235 U-233	0,02 0,03		$3 \cdot 10^{-4}$ $2 \cdot 10^{-4}$
Ag-111	95 0,2	247 1	342 6						7,5	$9,24 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	0,016 0,03		
Cd-113m	265 0,1								$5,11 \cdot 10^3$ [14 y]	$1,36 \cdot 10^{-4}$	U-235 U-233	0,012 0,02		
Cd-115	230 0,6	262 2	490 10	530 26					2,3	$3,01 \cdot 10^{-1}$	U-235 U-233	0,011 0,02	0,011 0,02	

Tabelle 3

Nuklid	Energie in keV Emissionswahrscheinlichkeit in %								T (d)	$\lambda(d^{-1})$	Uran	Spaltausbeuten in %		
												Y_t	Y_c	Y_i
Cd-115m	162 0,02	292 0,01	485 0,3	935 1,9	1130 0,02	1295 0,9	1425 0,02		43	$1,61 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	0,011 0,02	0,011	
In-115m ^T	335								0	\gg	U-235	0,011		
Cd-115	50								2,3	$3,01 \cdot 10^{-1}$	U-233	0,02		
Sn-117m	158 87	159 1							14	$4,95 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	0,011 0,01		
Sn-119m	24 16	65 0,1							250	$2,77 \cdot 10^{-3}$	U-235 U-233	0,011 0,02		
Sn-121m	37 9,1								$2,774 \cdot 10^4$ [76 y]	$2,50 \cdot 10^{-5}$	U-235 U-233	0,012 0,02		$8 \cdot 10^{-4}$ 0,00133
Sn-125	342 0,3	468 0,4	811 1,5	904 1,4	1068 4	1170 0,1	1410 0,1	1970 0,6	9,4	$7,37 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	0,021 0,1	0,013 0,052	
Sn-126	60 0	67 0	92 0						$7,3 \cdot 10^7$ [$2 \cdot 10^5$ y]	$9,49 \cdot 10^{-9}$	U-235 U-233	0,1 0,26		0,096 0,25
Sb-124	603 97	644 7	720 14	1048 2,4	1310 3	1370 5	1692 50	2088 7	60	$1,16 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	0,017 0,05		$1,16 \cdot 10^{-5}$ $3,41 \cdot 10^{-6}$

Tabelle 4

Nuklid	Energie in keV Emissionswahrscheinlichkeit in %								T (d)	$\lambda (d^{-1})$	Uran	Spaltausbeuten in %		
												Y_t	Y_c	Y_i
Sb-125 ^T	176	319	427	463	599	634	652	668	985,5	$7,03 \cdot 10^{-4}$	U-235	0,021		
-----									[2,7 y]	-----				
Sn-125	6	2	31	10	24	11	0,6	3	9,4	$7,37 \cdot 10^{-2}$	U-233	0,1		
Sb-126 ^T	415	665	695						12,5	$5,54 \cdot 10^{-2}$	U-235	0,1		$8,5 \cdot 10^{-4}$
-----									-----	-----				
Sb-126m	0	0	0						0	»	U-233	0,26		0,00221
Sb-126m ^T	420	660							0	»	U-235	0,1		0,00205
-----									$7,3 \cdot 10^7$	-----				
Sn-126	0	0							[2.10 ⁵ y]	$9,49 \cdot 10^{-9}$	U-233	0,26		0,00533
Sb-127	250	410	460	770					3,9	$1,78 \cdot 10^{-1}$	U-235	0,25		
	26*	11*	100*	45*							U-233	0,61		
Te-123m	159								117	$5,92 \cdot 10^{-3}$	U-235	0,014		
	84										U-233	0,04		
Te-125m	35	110							58	$1,19 \cdot 10^{-2}$	U-235	0,021		
	7	0,3									U-233	0,1		
Te-127 ^T	58	214	360	417					0	»	U-235	0,25		
-----									-----	-----				
Te-127m	0,01	0,03	0,05	0,3					109	$6,36 \cdot 10^{-3}$	U-233	0,61		
Te-127m ^T	59	89	670						109	$6,36 \cdot 10^{-3}$	U-235	0,25		
-----									-----	-----				
Sb-127	0,2	0,08	0,01						3,9	$1,78 \cdot 10^{-1}$	U-233	0,61		

Tabelle 5

Nuklid	Energie in keV Emissionswahrscheinlichkeit in %								T (d)	$\lambda (d^{-1})$	Uran	Spaltausbeuten in %		
												Y_t	Y_c	Y_c
Te-129 ^T	27	275	455	810	1083				0	➤	U-235	1		0,08
Te-129m	19	1,7	15	0,5	1,5				34	$2,04 \cdot 10^{-2}$	U-233	1,7		0,168
Te-129m	690 6								34	$2,04 \cdot 10^{-2}$	U-235 U-233	1 1,7	0,35 0,595	
Te-131 ^T	150	453	493	603	654	948	997	1147	0	➤	U-235	3,3		
Te-131m	68	16	5	4	1	3	4	6	1,3	$5,33 \cdot 10^{-1}$	U-233	3,44		
Te-131m	102 5	200 8	241 8	336 9	775 60	854 31	1127 13	1206 11	1,3	$5,33 \cdot 10^{-1}$	U-235 U-233	3,3 3,44		
Te-132	53 17	230 90							3,3	$2,10 \cdot 10^{-1}$	U-235 U-233	4,24 4,71	4,21 4,4	
J-129 ^T	40								$6,205 \cdot 10^9$ [$1,7 \cdot 10^7 y$]	$1,12 \cdot 10^{-10}$	U-235	1		
Te-129	9								0		U-233	1,7		
J-131 ^T	80	284	364	503	637	723			8,1	$8,56 \cdot 10^{-2}$	U-235	3,3		
Te-131	2,6	5,4	82	0,3	6,8	1,6			0	➤	U-233	3,44		
J-132 ^T	520	670	773	955	1140	1280	1398	1910	0	➤	U-235	4,24		0,03
Te-132	20	144	89	22	6	7	14	1,3	3,3	$2,10 \cdot 10^{-1}$	U-233	4,71		0,31

Tabelle 6

Nuklid	Energie in keV Emissionswahrscheinlichkeit in %								T (d)	$\lambda (d^{-1})$	Uran	Spaltausbeuten in %		
												Y_t	Y_c	Y_i
Xe-129m	40	197							8	$8,66 \cdot 10^{-2}$	U-235	1		
	9	6									U-233	1,7		
Xe-131m ^T	164								11,8	$5,87 \cdot 10^{-2}$	U-235	3,3		
J-131	2								8,1	$8,56 \cdot 10^{-2}$	U-233	3,44		
Xe-133 ^T	81								5,3	$1,31 \cdot 10^{-1}$	U-235	7,48		
Xe-133m	37								2,3	$3,01 \cdot 10^{-1}$	U-233	5,68		
Xe-133m	233								2,3	$3,01 \cdot 10^{-1}$	U-235	7,48		
	14										U-233	5,68		
Cs-134	475	563	569	605	796	1038	1168	1365	748,3	$9,26 \cdot 10^{-4}$	U-235	7,62		
	1,4	4,5	23	98	99	1	1,9	3,4	[2,05 y]		U-233	5,93		$8,9 \cdot 10^{-6}$
Cs-136	67	86	164	273	340	818	1050	1250	13	$5,33 \cdot 10^{-2}$	U-235	6,47		0,0596
	11	6	36	18	53	100	82	20			U-233	6,8		0,12
Ba-137m	662								0	»	U-235	6,21		
Cs-137 ^{β-}	85								$1,095 \cdot 10^4$ 30 y	$6,33 \cdot 10^{-5}$	U-233	6,13		
Ba-135m	268								1,2	$5,78 \cdot 10^{-1}$	U-235	6,45		
	16										U-233	6,02		

Tabelle 7

Nuklid	Energie in keV Emissionswahrscheinlichkeit in %								T (d)	$\lambda(d^{-1})$	Uran	Spaltausbeuten in		
												Y_t	Y_c	Y_i
Ba-140	30	163	305	438	537				12,8	$5,41 \cdot 10^{-2}$	U-235	6,3	6,25	
	11	6	6	5	34						U-233	6,3	6,25	
La-140 ^T	329	487	815	923	1596	2530			1,7	$4,08 \cdot 10^{-1}$	U-235	6,3		0,04
Ba-140	20	40	19	10	96	3			12,8	$5,41 \cdot 10^{-2}$	U-233	6,3		0,04
Ce-141	145								32,5	$2,13 \cdot 10^{-2}$	U-235	5,73		
	48										U-233	6,24		
Ce-143	57	293	351	493	668	725	881	1100	1,4	$4,95 \cdot 10^{-1}$	U-235	5,89		
	11	46	4	2,4	7	8	1,4	0,6			U-233	5,57		
Ce-144	34	41	53	80	134				284	$2,44 \cdot 10^{-3}$	U-235	5,4		
	0,8	0,9	0,8	2	11						U-233	4,48		
Pr-144 ^T	695	1487	2186						0	\gg	U-235	5,4		
Ce-144	1,5	0,3	0,7						284	$2,44 \cdot 10^{-3}$	U-233	4,48		
Nd-147	91	120	275	319	400	442	533	688	11,1	$6,24 \cdot 10^{-2}$	U-235	2,13		
	28	0,8	1,8	3	1,6	2	13	1			U-233	1,78		
Pm-148 ^T	551	914	1465						5,4	$1,28 \cdot 10^{-1}$	U-235	1,68		
Pm-148m	27	15	23						42	$1,65 \cdot 10^{-2}$	U-233	1,25		

Tabelle 8

Nuklid	Energie in keV Emissionswahrscheinlichkeit in %								T (d)	$\lambda (d^{-1})$	Uran	Spaltausbeuten in %		
												Y_t	Y_c	Y_i
Pm-148m	99	289	413	551	630	727	916	1015	42	$1,65 \cdot 10^{-2}$	U-235	1,68		$6 \cdot 10^{-6}$
	1,1	13	17	95	87	36	21	20			U-233	1,25		$4,46 \cdot 10^{-6}$
Pm-149	286	580	850						2,2	$3,15 \cdot 10^{-1}$	U-235	1		
	2	0,1	0,2								U-233	0,71		
Pm-151	65	100	170	240	275	340	450	720	1,2	$5,78 \cdot 10^{-1}$	U-235	0,431		
	5	7	18	5	6	21	5	6			U-233	0,363		
Sm-151 ^T	22								$3,1755 \cdot 10^{-4}$	$2,18 \cdot 10^{-5}$	U-235	0,431		
----- Pm-151	4								[87y] 1,2		U-233	0,363		
Sm-153	70	103	173						2	$3,47 \cdot 10^{-1}$	U-235	0,169	0,15	
	5,4	28	0,4								U-233	0,112	0,11	
Eu-154	123	248	593	724	759	876	1006	1278	$5,84 \cdot 10^{-3}$ [16 y]	$1,19 \cdot 10^{-4}$	U-235	0,056		
	38	7	6	21	5	12	31	37			U-233	0,024		
Eu-155	87	105							657 [1,8 y]	$1,05 \cdot 10^{-3}$	U-235	0,0291		
	32	20									U-233	0,03		
Eu-156	89	646	723	812	1079	1150	1240	1970	15,4	$4,50 \cdot 10^{-2}$	U-235	0,0125		$5 \cdot 10^{-4}$
	8	7	6	9	11	14	16	7			U-233	0,0125		$5 \cdot 10^{-4}$

Tabelle 9

Ordnung der Spaltprodukte nach ihrer Energie

<u>Energie(keV)</u>	<u>Nuklid</u>	<u>Energie(keV)</u>	<u>Nuklid</u>
22	Sm-151	99	Pm-148m
24	Sn-119m	100	Pm-151
27	Te-129	102	Te-131m
30	Nb- 93m	103	Sm-153
30	Ba-140	105	Eu-155
34	Ce-144	110	Te-125m
35	Te-125m	120	Nd-147
37	Sn-121m	123	Eu-154
40	Rh-103m	134	Ce-144
40	J-129	140	Tc- 99m
40	Xe-129m	145	Ce-141
41	Mo- 99	150	Te-131
41	Ce-144	158	Sn-117m
53	Ru-103	159	Sn-117m
53	Te-132	159	Te-123m
53	Ce-144	161	As- 77
57	Ce-143	162	Cd-115m
58	Te-127	163	Ba-140
59	Te-127m	164	Xe-131m
60	Sn-126	164	Cs-136
65	Sn-119m	170	Pm-151
65	Pm-151	173	Sm-153
67	Sn-126	176	Sb-125
67	Cs-136	181	Mo- 99
70	Sm-153	197	Xe-129m
80	J-131	200	Te-131m
80	Ce-144	214	Te-127
81	Xe-133	230	Cd-115
86	As- 77	230	Te-132
86	Cs-136	233	Xe-133m
87	Eu-155	235	Zr- 95
89	Te-127m	235	Nb- 95m
89	Eu-156	239	As- 77
91	Nd-147	240	Pm-151
92	Sn-126	241	Te-131m
95	Ag-111	247	Ag-111

Ordnung der Spaltprodukte nach ihrer Energie

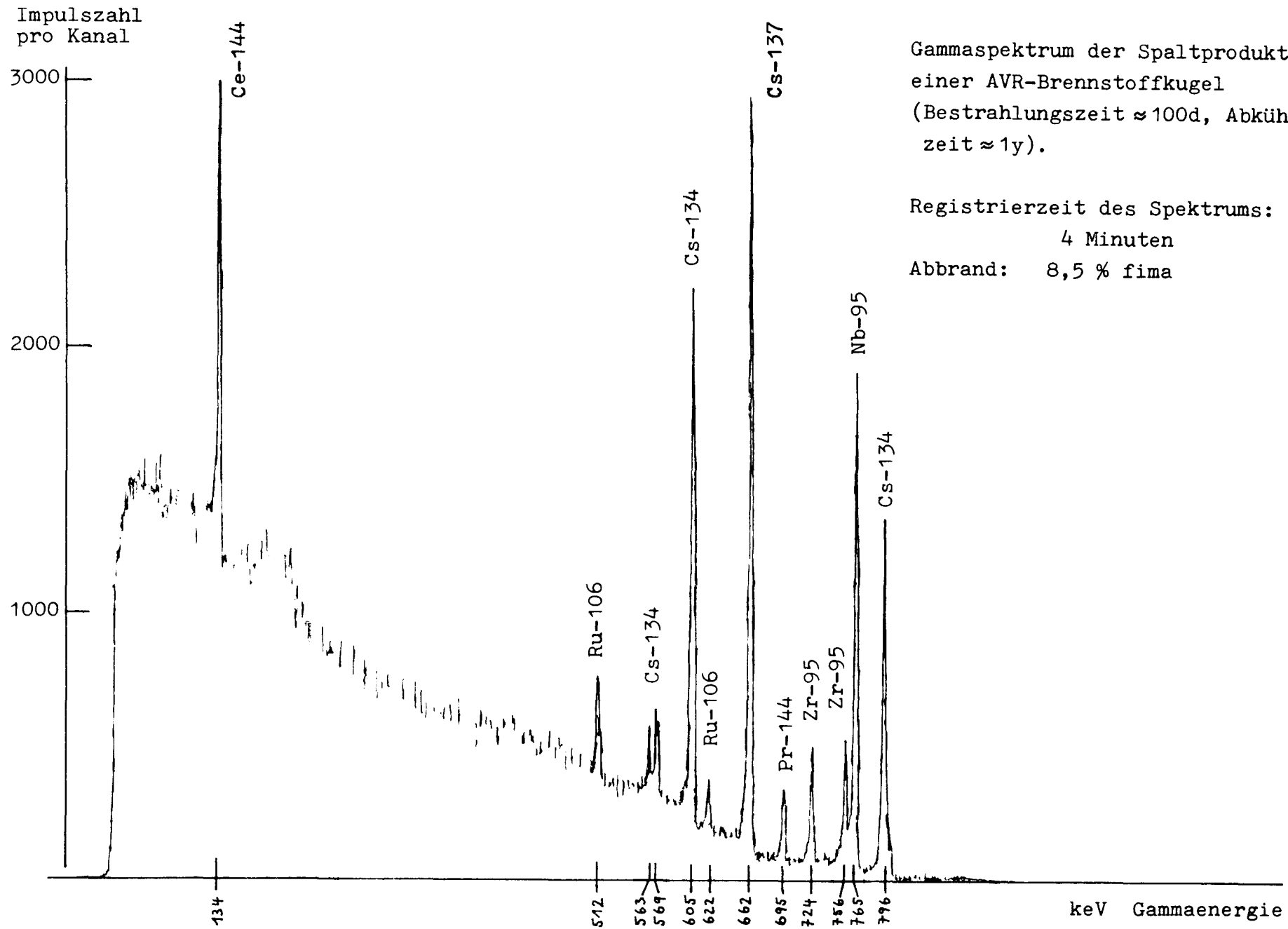
<u>Energie(keV)</u>	<u>Nuklid</u>	<u>Energie(keV)</u>	<u>Nuklid</u>
248	Eu-154	417	Te-127
250	Sb-127	420	Sb-126m
262	Cd-115	427	Sb-125
265	Cd-113m	438	Ba-140
268	Ba-135m	442	Nd-147
273	Cs-136	443	Rh-105
275	Te-129	450	Pm-151
275	Nd-147	453	Te-131
275	Pm-151	455	Te-129
284	J-131	460	Sb-127
286	Pm-149	463	Sb-125
289	Pm-148m	468	Sn-125
292	Cd-115m	475	Cs-134
293	Ce-143	485	Cd-115m
298	Ru-103	487	La-140
305	Ba-140	490	Cd-115
306	Rh-105	493	Te-131
319	Rh-105	493	Ce-143
319	Sb-125	497	Ru-103
319	Nd-147	503	J-131
329	La-140	512	Rh-106
335	In-115m	514	Kr- 85
336	Te-131m	520	J-132
340	Cs-136	522	As- 77
340	Pm-151	530	Cd-115
342	Ag-111	533	Nd-147
342	Sn-125	537	Ba-140
351	Ce-143	551	Pm-148
360	Ru-103	551	Pm-148m
360	Te-127	554	Br- 82
364	J-131	557	Ru-103
372	Mo- 99	559	As- 76
400	Nd-147	563	Cs-134
410	Sb-127	569	Cs-134
413	Pm-148m	580	Pm-149
415	Sb-126	593	Eu-154

Ordnung der Spaltprodukte nach ihrer Energie

<u>Energie(keV)</u>	<u>Nuklid</u>	<u>Energie(keV)</u>	<u>Nuklid</u>
599	Sb-125	723	Eu-156
603	Sb-124	724	Zr- 95
603	Te-131	724	Eu-154
605	Cs-134	725	Ce-143
610	Ru-103	727	Pm-148m
619	Br- 82	740	Mo- 99
622	Rh-106	756	Zr- 95
630	Pm-148m	759	Eu-154
634	Sb-125	764	Ag-110m
637	J-131	765	Nb- 95
644	Sb-124	770	Tc- 98
646	Eu-156	770	Sb-127
652	Sb-125	773	J-132
654	Te-131	775	As- 76
657	As- 76	775	Te-131m
658	Ag-110	777	Br- 82
658	Ag-110m	780	Mo- 99
660	Sb-126m	796	Cs-134
662	Ba-137m	810	Te-129
665	Sb-126	811	Sn-125
668	Sb-125	812	Eu-156
668	Ce-143	815	La-140
669	Tc- 98	818	Cs-136
670	Te-127m	828	Br- 82
670	J-132	850	Pm-149
687	Ag-110m	854	Te-131m
688	Nd-147	871	Nb- 94
690	Te-129m	876	Eu-154
695	Sb-126	881	Ce-143
695	Pr-144	885	Ag-110m
698	Br- 82	904	Sn-125
702	Nb- 94	913	Y- 89m
706	Ag-110m	914	Pm-148
720	Sb-124	916	Pm-148m
720	Pm-151	923	La-140
723	J-131	930	Mo- 99

Ordnung der Spaltprodukte nach ihrer Energie

<u>Energie(keV)</u>	<u>Nuklid</u>	<u>Energie(keV)</u>	<u>Nuklid</u>
935	Cd-115m	1317	Br- 82
937	Ag-110m	1365	Cs-134
948	Te-131	1370	Sb-124
955	J-132	1384	Ag-110m
997	Te-131	1398	J-132
1006	Eu-154	1410	Sn-125
1015	Pm-148m	1425	Cd-115m
1038	Cs-134	1438	As- 76
1044	Br- 82	1465	Pm-148
1048	Sb-124	1475	Br- 82
1050	Rh-106	1476	Ag-110
1050	Cs-136	1487	Pr-144
1068	Sn-125	1505	Ag-110m
1078	Rb- 86	1550	Rh-106
1079	Eu-156	1596	La-140
1083	Te-129	1692	Sb-124
1100	Ce-143	1789	As- 76
1127	Te-131m	1910	J-132
1130	Rh-106	1970	Sn-125
1130	Cd-115m	1970	Eu-156
1140	J-132	2088	Sb-124
1147	Te-131	2098	As- 76
1150	Eu-156	2186	Pr-144
1168	Cs-134	2530	La-140
1170	Sn-125		
1206	Te-131m		
1210	Y- 91		
1216	As- 76		
1229	As- 76		
1240	Eu-156		
1250	Cs-136		
1278	Eu-154		
1280	J-132		
1295	Cd-115m		
1310	Sb-124		



Gammaspektrum der Spaltprodukte
einer AVR-Brennstoffkugel
(Bestrahlungszeit $\approx 100d$, Abkühl-
zeit $\approx 1y$).

Registrierzeit des Spektrums:

4 Minuten

Abbrand: 8,5 % fima